



# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Letland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauritanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

**"Verfahren und Anlage zum Herstellen von Granulat aus polyfunktionellen Carbonsäuren und Alkoholen, insbesondere PET-Granulat"**

1

**Beschreibung**

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen von Granulat aus polyfunktionellen Carbonsäuren und Alkoholen, insbesondere PET-Granulat, wonach Terephthalsäure und Ethylenglykol nach ihrer Veresterung und einer Prepolykondensation als niedrigviskoses Prekondensat gefiltert, granuliert und einer Festphasenpolykondensation zugeführt wird sowie anschließend als teilkristallines Granulat mit hoher Viskosität zur Verfügung steht. - PET meint bekanntlich Polyethylenterephthalat.

Es ist ein derartiges Verfahren zum Herstellen von PET-Granulat bekannt, bei welchem das Prekondensat nach der Veresterung und Prepolykondensation von Ethylenglykol (EG) und Terephthalsäure (PTA) einem unterdruckbeaufschlagten Reaktor zugeführt wird, um einerseits die Viskosität des weitgehend flüssigen und kurzkettigen Polymers zu erhöhen, andererseits freiwerdendes Ethylenglykol der Veresterung wieder zuzuführen. Nach der Reaktorbehandlung wird das entstandene Polykondensat mit demineralisiertem Wasser abgekühlt und zu Granulat geschnitten, so daß zylindrische Pellets entstehen, die einerseits weitgehend amorph sind, andererseits an ihren Schnittenden Ansätze aufweisen, die im Zuge des Transports und ihrer Zwischenlagerung zum Abbrechen neigen und eine Staubentwicklung verursachen. Diese Pelletes müssen, bevor sie - für eine Verarbeitung in beispielsweise Extrudern - zur Verfügung stehen, in einer getrennten Prozeßstufe teilkristallisiert werden und werden dann einer Festphasenpolykondensation unter Stickstoffzufuhr unterworfen. Dadurch wird eine weitere Kristallisierung und Viskositätserhöhung erreicht, so daß schließlich hochviskose Pellets zur Verfügung stehen. - Dieses bekannte Verfahren ist aus verschiedenen Gründen nachteilig. Zunächst einmal stört, daß sich die Pellets nach ihrer Granulierung in einem weitgehend amorphen Zustand befinden, welcher in einer nachgeschalteten

ERSATZBLATT (REGEL 26)

getrennten Behandlungsstufe deren Teilkristallisierung verlangt. Hinzu kommt, daß bei den amorphen Pellets deren Ansätze im Bereich der Schnittenden auf dem Transportwege und im Zuge ihrer Lagerung besonders leicht zum Abbrechen und folglich zur Staubbildung neigen. Ferner stört der apparative Aufwand und Energieaufwand, weil besondere Behandlungsstufen erforderlich sind, wie die unterdruckbeaufschlagte Reaktorstufe und Teilkristallisationsstufe. Hinzu kommt der erhebliche Bedarf an demineralisiertem Wasser für die Granulierung des Prekondensates.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren anzugeben, wonach sich Granulat aus polyfunktionellen Carbonsäuren und Alkoholen, insbesondere PET-Granulat als runde, staubfreie Pellets gleichmäßiger Größe und einwandfreier Qualität in verfestigter und teilkristallisierter Ausführungsform mit reduziertem Apparate- und Energieaufwand in wirtschaftlicher und rationeller Weise herstellen lassen. Außerdem soll eine Anlage zur Durchführung des Verfahrens geschaffen werden, die sich durch einfache und funktionsgerechte Bauweise auszeichnet.

Diese Aufgabe löst die Erfindung bei einem gattungsgemäßen Verfahren dadurch, daß das schmelzflüssige Prekondensat zum Zwecke des Granulierens einem Tropfturm mit einer am Kopf des Tropfturms angeordneten und beheizten Verteilertropfdüse zugeführt wird, daß das Prekondensat aus der Verteilertropfdüse unter Bildung tropfenförmiger Pellets austritt und die Pellets nach einer vorgegebenen freien Fallhöhe von einem heißen Stickstoffstrom im Gegenstrom unter Reduzierung der Fallgeschwindigkeit und Beschleunigung einer Kristallisation mit zunehmendem Kristallisationsgrad angeblasen werden, und daß die am Boden des Tropfturms austretenden Pellets als getrocknete und teilkristallisierte Pellets der Festphasenpolykondensation zugeführt werden. - Diese Maßnahmen der Erfindung haben zur

Folge, daß das Prekondensat mittels der Verteilertropfdüse in tropfenförmige und folglich runde Pellets überführt wird, und zwar über praktisch dem gesamten Turmquerschnitt. Tatsächlich wird mit Hilfe der Verteilertropfdüse jede Fadenbildung verhindert. Auf dem freien Fallweg bildet sich bereits eine Außenhaut. Eine weitere Verfestigung der Pellets wird mittels des Stickstoffgegenstromes erreicht. Dieser Stickstoffgegenstrom läßt sich unschwer so einstellen, daß keine störenden Turbulenzen auftreten, vielmehr lediglich die Fallgeschwindigkeit der Pellets reduziert und infolge der Stickstoffanblasung zugleich eine Teilkristallisation erreicht wird. Mittels des Stickstoffgegenstromes läßt sich die Verweilzeit der Pellets in dem Tropfturm derart einstellen, daß die Pellets zugleich hinreichend getrocknet und in gleichmäßige Tropfen und folglich gleichmäßig runde Pellets von einwandfreier Qualität überführt werden. Überraschenderweise wird über die freie Fallhöhe und durch das Anblasen mit Stickstoff im Gegenstrom eine derartige Verfestigung der Pellets erreicht, daß diese selbst dann nicht aneinander anbacken, wenn mittels der Verteilertropfdüse tropfenförmige Pellets in einer dicht bei dichten Verteilung über dem Tropfturmquerschnitt erzeugt werden und niederfallen. Die runden und erheblich verfestigten sowie teilkristallisierten Pellets lassen sich ohne nahezu jede Staubeentwicklung transportieren und lagern und insbesondere unter Berücksichtigung ihrer gleichmäßigen Größe in der Festphasenpolykondensation auch gleichmäßig polykondensieren. Im Ergebnis läßt sich nach dem erfindungsgemäßen Verfahren Granulat aus polyfunktionellen Carbonsäuren und Alkoholen, insbesondere PET-Pellets, von hoher Qualität in rationeller und wirtschaftlicher Weise erzeugen. Das gelingt ohne eine unterdruckbeaufschlagte Reaktorbehandlung sowie ohne Abkühlung mit demineralisiertem Wasser und Granuliermaßnahmen, die zu zylindrischen Pellets mit der Neigung zur Staubeentwicklung führen und schließlich ohne Teilkristallisation in einer

getrennten Verfahrensstufe, weil nach Lehre der Erfindung von vornherein teilkristallisierte Pellets mit einem vorgegebenen Kristallisationsgrad und nicht vorab weitgehend amorphe Pellets erzeugt werden. Im Ergebnis läßt sich auch der apparative Aufwand und Energieaufwand für die Erzeugung der erfindungsgemäßen Pellets erheblich reduzieren.

Weitere erfindungswesentliche Maßnahmen sind im folgenden aufgeführt. So sieht die Erfindung vor, daß die Pellets in dem Tropfturm in einer oberen und einer unteren Stufe mit einem Stickstoffgegenstrom beaufschlagt werden, um eine möglichst lange Verweilzeit und folglich hohe Teilkristallisation bzw. Verfestigung der runden Pellets ohne störende Turbulenzerzeugung zu erreichen. Vielmehr wird mit einer stufenweisen Reduzierung der Fallgeschwindigkeit und Beschleunigung der Teilkristallisation unter ständiger Zunahme des Kristallisationsgrades gearbeitet. Vorzugsweise wird der Stickstoff im Bodenbereich des Tropfturms zugeführt und werden die beiden Stickstoffgegenstrom-Stufen durch eine stufenweise Stickstoffabsaugung erzeugt. Dadurch lassen sich unterschiedliche Anblasgeschwindigkeiten in der oberen und unteren Stufe erzielen. Die Pellets werden in der oberen Stufe zweckmäßigerweise mit 1 bis 3 m/s und in der unteren Stufe mit 3 bis 7 m/s im Gegenstrom angeblasen. Dazu wird dem Tropfturm getrockneter Stickstoff mit einer Temperatur von 160 °C bis 250 °C zugeführt. Beides führt zur Erhöhung nicht nur der Teilkristallisation sondern auch der Viskosität der Pellets und folglich ihrer Verfestigung. Der aus dem Tropfturm abgesaugte Stickstoff kann einem Ethylenglykolseparator und einem Stickstofftrockner zugeführt werden, um danach das rückgewonnene Ethylenglykol der Veresterungsstufe zuzuführen, und zwar ohne Einsatz eines sonst extrem kostenaufwendigen Reaktors und ohne eine unwirtschaftliche Ethylenglykolvernichtung im Wege einer katalytischen Verbrennung.

ERSATZBLATT (REGEL 26)

Gegenstand der Erfindung ist auch eine Anlage zur Durchführung des beanspruchten Verfahrens, mit zumindest einer Veresterungsstufe, einer Prepolykondensationsstufe, einer Filterstufe, einer Granuliertvorrichtung und einer Festphasenpolykondensationsstufe, die sich durch eine besonders einfache und funktionsgerechte Bauweise auszeichnet und dadurch gekennzeichnet ist, daß die Granuliertvorrichtung einen Tropfturm aufweist, daß der Tropfturm im Kopfbereich eine beheizte Verteilertropfdüse für das zugeführte Prekondensat aufweist, daß der Tropfturm nach einer vorgegebenen freien Fallhöhe für die aus der Verteilertropfdüse tropfenförmig austretenden Pellets zumindest eine Stickstoffabsaugung aufweist, daß der Tropfturm im Bodenbereich eine Stickstoffzuführung aufweist, und daß der bodenseitig zugeführte Stickstoff die niederfallenden Pellets im Gegenstrom anbläst. Dabei kann der Tropfturm eine obere und im vorgegebenen Höhenabstand eine untere Stickstoffabsaugung aufweisen. Im Rahmen der Erfindung sind auch weitere Stickstoffabsaugungen denkbar. Die Verteilertropfdüse ist erfindungsgemäß als Düsenscheibe mit einer Mehrzahl von Einzeldüsen bzw. Düsenaustrittsöffnungen und innenseitig angeordneten Heizkanälen ausgebildet. Dadurch läßt sich eine besonders gleichmäßige Verteilung der tropfenförmigen Pellets über den Tropfturmquerschnitt erreichen. Die Stickstoffabsaugungen sind zweckmäßigerweise in der Turmwand angeordnet, weisen z. B. umlaufende Siebdurchtritte mit die Siebdurchtritte abdeckenden Absaugkanälen und daran angeschlossenen Saugpumpen auf. Den Saugpumpen ist vorzugsweise ein gemeinsamer Ethylenglykolseparator und Stickstofftrockner zugeordnet. Der getrocknete und aufgeheizte Stickstoff wird dem Tropfturm im Bodenbereich zur Erzeugung des Stickstoffgegenstromes wieder zugeführt, während das rückgewonnene Ethylenglykol - wie bereits oben erwähnt - an die Veresterungsstufe zurückgeführt wird. Denn der Ethylenglykolseparator steht mit der Veresterungsstufe in

Verbindung. Weiter sieht die Erfindung vor, daß der Tropfturm einen im Bodenbereich angeordneten, z. B. umlaufenden Siebdurchtritt und einen den Siebdurchtritt abdeckenden Zuführungskanal für die Zuführung von getrocknetem und heißem Stickstoff aufweist. Außerdem kann der Tropfturm bodenseitig einen Pelletaustritt besitzen, wobei unterhalb des Pelletaustritts ein gasdichter Bandförderer zum Abtransport der Pellets angeordnet ist, der mit getrocknetem und heißem Stickstoff beaufschlagbar ist, so daß praktisch ein Trockenförderer verwirklicht wird. Die freie Fallhöhe der Pellets beträgt vorzugsweise 5 bis 10 m und der Höhenabstand zwischen den Stickstoffabsaugungen 10 bis 30 m.

Im Rahmen der Erfindung können statt Stickstoff auch andere Inertgase, wie z. B. CO<sub>2</sub>, Verwendung finden.

Im folgenden wird die Erfindung anhand einer lediglich ein Ausführungsbeispiel darstellenden Zeichnung näher erläutert. Es zeigen

Fig. 1 die erfindungsgemäße Anlage in einem Fließdiagramm und

Fig. 2 einen schematischen Ausschnitt aus dem Gegenstand nach Fig. 1 im Bereich des Tropfturms.

In den Figuren ist eine Anlage zum Herstellen von Granulat aus polyfunktionellen Carbonsäuren und Alkoholen, insbesondere PET-Granulat, dargestellt, mit zumindest einer Veresterungsstufe 1 für Terephthalsäure und Ethylenglykol, einer sich anschließenden unterdruckbeaufschlagten Prepolykondensationsstufe 2, einer nachfolgenden Filterstufe 3 mit Pumpe, einer Granuliertvorrichtung 4 und einer Festphasenpolykondensationsstufe 5, wobei sich zwischen der Granu-



liervorrichtung 4 und der Festphasenpolykondensationsstufe 5 eine Transportvorrichtung 6 für das Granulat befindet.

Die Granuliertvorrichtung 4 weist einen Tropfturm 7 auf. Der  
5 Tropfturm 7 weist im Kopfbereich eine beheizte Verteilertropfdüse 8 für das zugeführte gefilterte und schmelzflüssige Prekondensat auf. Der Tropfturm 7 weist ferner nach einer vorgegebenen freien Fallhöhe H für die aus der Verteilertropfdüse 8 tropfenförmig austretenden Pellets 9  
10 zumindest eine Stickstoffabsaugung 10a auf. Ferner besitzt der Tropfturm 7 im Bodenbereich eine Stickstoffzuführung 11. Der bodenseitig zugeführte Stickstoff bläst die im Tropfturm 7 niederfallenden Pellets 9 im Gegenstrom an. Nach dem Ausführungsbeispiel weist der Tropfturm 7 eine obere und im  
15 vorgegebenen Höhenabstand darunter eine untere Stickstoffabsaugung 10a, 10b auf. - Die Verteilertropfdüse 8 ist als Düsenscheibe mit einer Mehrzahl von Einzeldüsen und innenseitig angeordneten Heizkanälen ausgebildet, die nicht gezeigt sind. - Die Stickstoffabsaugungen 10a, 10b weisen in der  
20 Turmwand angeordnete, z. B. umlaufende Siebdurchtritte 12 bzw. -bänder mit die Siebdurchtritte 12 abdeckenden Absaugkanälen 13 und daran angeschlossenen Saugpumpen 14 auf. Den Saugpumpen 14 ist ein Ethylenglykolseparator 15 und ein Stickstofftrockner 16 nachgeordnet. Der Ethylenglykolseparator 15 steht mit der  
25 Veresterungsstufe 1 in Verbindung.

Der Tropfturm 7 weist einen im Bodenbereich angeordneten, z. B. umlaufenden Siebdurchtritt 17 und einen den Siebdurchtritt abdeckenden Zuführungskanal 18 für die Zuführung von  
30 getrocknetem und heißem Stickstoff auf. Der Stickstoff wird in einem Stickstoffkreislauf 19 gereinigt. Dieser Stickstoffkreislauf 19 steht einerseits mit dem Stickstofftrockner 16, andererseits mit der Festphasenpolykondensationsstufe 5 in Verbindung. - Außerdem weist der Tropfturm 7

bodenseitig einen Pelletaustritt 20 auf. Unterhalb des Pelletaustritts 20 ist ein gasdichter Bandförderer 21 zum Abtransportieren der Pellets 9 angeordnet, der mit getrocknetem und beheiztem Stickstoff beaufschlagbar ist und folglich einen  
5 Trockenförderer als Transportvorrichtung für das Granulat bildet, der zu der Feststoffphasenpolykondensationsstufe 5 führt. Die Weiterverarbeitung der Pellets 9 findet z. B. in einem Extruder statt. - Die freie Fallhöhe H der Pellets beträgt 5 bis 10 m, der Höhenabstand zwischen den Stickstoffabsaugungen  
10 10 bis 30 m.

## Patentansprüche

1. Verfahren zum Herstellen von Granulat aus polyfunktionellen Carbonsäuren und Alkoholen, insbesondere von PET-Granulat, wonach Terephthalsäure und Ethylenglykol nach ihrer Veresterung und einer Prepolykondensation als niedrigviskoses Prekondensat gefiltert, granuliert und einer Festphasenpolykondensation zugeführt wird sowie anschließend als teilkristallines Granulat mit hoher Viskosität zur Verfügung steht, dadurch gekennzeichnet, daß das Prekondensat zum Zwecke des Granulierens einem Tropfturm mit einer am Kopf des Tropfturms angeordneten und beheizten Verteilertropfdüse zugeführt wird, daß das Prekondensat aus der Verteilertropfdüse unter Bildung tropfenförmiger Pellets austritt und die Pellets nach einer vorgegebenen freien Fallhöhe von einem heißen Stickstoffstrom im Gegenstrom unter Reduzierung der Fallgeschwindigkeit und Beschleunigung einer Kristallisation mit zunehmendem Kristallisationsgrad angeblasen werden, und daß die am Boden des Tropfturms austretenden Pellets als getrocknete und teilkristallisierte Pellets der Festphasenpolykondensation zugeführt werden.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Pellets in dem Tropfturm in einer oberen und einer unteren Stufe mit einem Stickstoffgegenstrom beaufschlagt werden.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Stickstoff im Bodenbereich des Tropfturms zugeführt und die beiden Stickstoffgegenstrom-Stufen durch eine stufenweise Stickstoffabsaugung erzeugt werden.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Pellets in der oberen Stufe mit 1 bis 3

m/s und in der unteren Stufe mit 3 bis 7 m/s im Gegenstrom angeblasen werden.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß dem Tropfturm getrockneter Stickstoff mit einer Temperatur von 160 °C bis 250 °C zugeführt wird.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der aus dem Tropfturm abgesaugte Stickstoff einem Ethylenglykolseparator und einem Stickstofftrockner zugeführt wird und das rückgewonnene Ethylenglykol der Veresterungsstufe zugeführt wird.

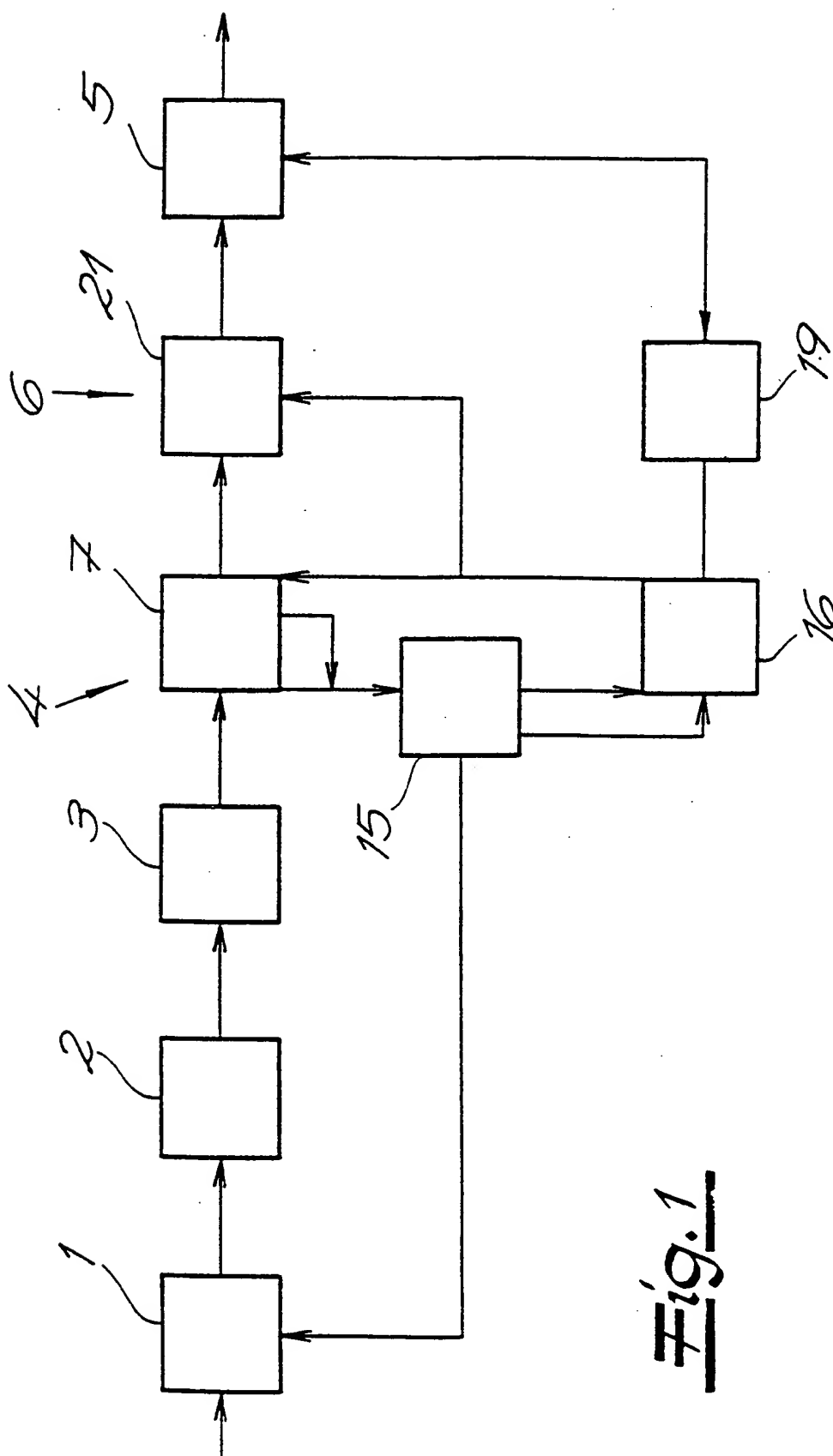
7. Anlage zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 6, mit zumindest einer Veresterungsstufe, einer Prepolykondensationsstufe, einer Filterstufe, einer Granuliertvorrichtung und einer Festphasenpolykondensationsstufe, dadurch gekennzeichnet, daß die Granuliertvorrichtung (4) einen Tropfturm (7) aufweist, daß der Tropfturm (7) im Kopfbereich eine beheizte Verteilertropfdüse (8) für das zugeführte Prekondensat aufweist, daß der Tropfturm (7) nach einer vorgegebenen freien Fallhöhe (H) für die aus der Verteilertropfdüse (8) tropfenförmig austretenden Pellets (9) zumindest eine Stickstoffabsaugung (10a) aufweist, daß der Tropfturm (7) im Bodenbereich eine Stickstoffzuführung (11) aufweist, und daß der bodenseitig zugeführte Stickstoff die niederfallenden Pellets (9) im Gegenstrom anbläst.

8. Anlage nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Tropfturm (7) eine obere und im vorgegebenen Höhenabstand eine untere Stickstoffabsaugung (10a, 10b) aufweist.

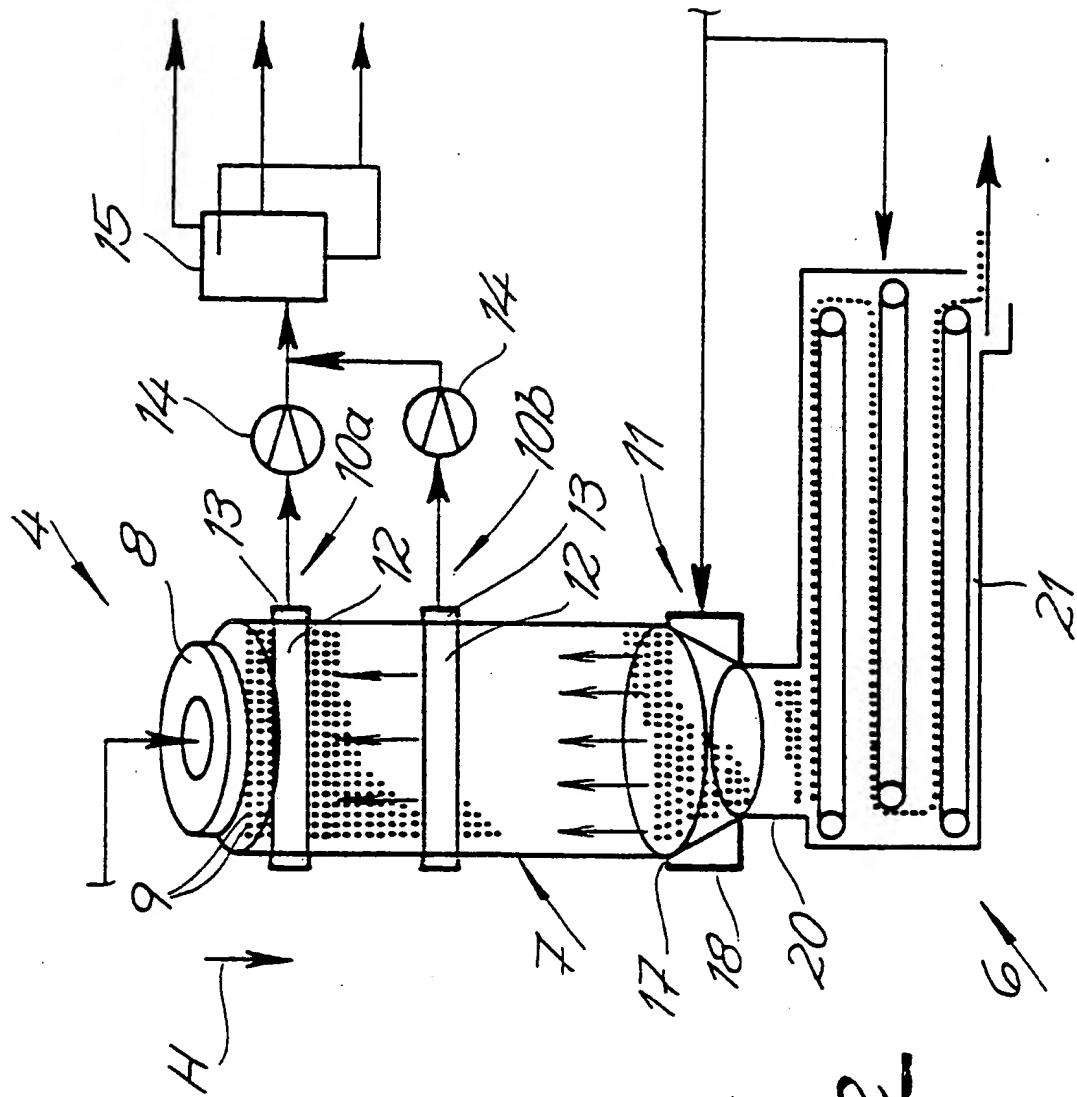
9. Anlage nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilertropfdüse (8) als Düsenscheibe mit einer Mehrzahl

von Einzeldüsen und innenseitig angeordneten Heizkanälen ausgebildet ist.

- 5 10. Anlage nach einem der Ansprüche 7 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Stickstoffabsaugungen (10a, 10b) in der Turmwand angeordnete, z. B. umlaufende Siebdurchtritte (12) mit die Siebdurchtritte (12) abdeckenden Absaugkanälen (13) und daran angeschlossenen Saugpumpen (14) aufweisen.
- 10 11. Anlage nach einem der Ansprüche 7 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß den Saugpumpen (14) ein Ethylenglykolseparator (15) und ein Stickstofftrockner (16) nachgeordnet ist.
- 15 12. Anlage nach einem der Ansprüche 7 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Ethylenglykolseparator (15) mit der Veresterungsstufe (1) in Verbindung steht.
- 20 13. Anlage nach einem der Ansprüche 7 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß der Tropfturm (7) einen im Bodenbereich angeordneten, z. B. umlaufenden Siebdurchtritt (17) und einen den Siebdurchtritt (17) abdeckenden Zuführungskanal (18) für die Zuführung von getrocknetem und heißem Stickstoff aufweist.
- 25 14. Anlage nach einem der Ansprüche 7 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß der Tropfturm (7) bodenseitig einen Pelletaustritt (20) aufweist und unterhalb des Pelletaustritts (20) ein gasdichter Bandförderer (21) zum Abtransportieren der Pellets (9) angeordnet ist, der mit getrocknetem und heißem Stickstoff beaufschlagbar ist.
- 30 15. Anlage nach einem der Ansprüche 7 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß die freie Fallhöhe (H) der Pellets 5 bis 10 m und der Höhenabstand zwischen den Stickstoffabsaugungen 10 bis 30 m beträgt.



**Fig. 1**

Fig. 2